

17.11.2004

日 本 国 特 許 庁
JAPAN PATENT OFFICE

RECD 13 JAN 2005

WIPO

PCT

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日 2 0 0 3 年 1 1 月 1 8 日 .
Date of Application:

出 願 番 号 特 願 2 0 0 3 - 3 8 8 4 6 7
Application Number:
[ST. 10/C] : [J P 2 0 0 3 - 3 8 8 4 6 7]

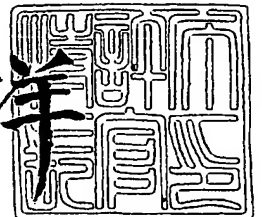
出 願 人 独 立 行 政 法 人 物 質 ・ 材 料 研 究 機 構
Applicant(s):

**PRIORITY
DOCUMENT**
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN
COMPLIANCE WITH RULE 17.1(a) OR (b)

2 0 0 4 年 1 2 月 2 2 日

特許庁長官
Commissioner,
Japan Patent Office

小 川 洋



【書類名】 特許願
【整理番号】 03-MS-173
【提出日】 平成15年11月18日
【あて先】 特許庁長官 殿
【国際特許分類】 C09K 11/63
【発明者】
 【住所又は居所】 茨城県つくば市千現一丁目2番1号 独立行政法人物質・材料研
 究機構内
 【氏名】 谷口 尚
【発明者】
 【住所又は居所】 茨城県つくば市千現一丁目2番1号 独立行政法人物質・材料研
 究機構内
 【氏名】 渡邊 賢司
【特許出願人】
 【識別番号】 301023238
 【氏名又は名称】 独立行政法人物質・材料研究機構
 【代表者】 岸 輝雄
【提出物件の目録】
 【物件名】 特許請求の範囲 1
 【物件名】 明細書 1
 【物件名】 図面 1
 【物件名】 要約書 1

【書類名】 特許請求の範囲**【請求項 1】**

波長 235 nm 以下に固有の紫外線発光バンドを有してなることを特徴とする、短波長光発光特性を有してなる高純度六方晶窒化ホウ素単結晶。

【請求項 2】

前記固有の紫外線発光バンドが、複数の固有の紫外線発光バンドを含んでいる、請求項 1 に記載の短波長光発光特性を有してなる高純度六方晶窒化ホウ素単結晶。

【請求項 3】

前記複数の固有の紫外線発光バンドの一部が波長 210 nm～215 nm に分布し、残余バンドが 215 nm を超え 235 nm 以下に分布している、請求項 2 に記載の短波長光発光特性を有してなる高純度六方晶窒化ホウ素単結晶。

【請求項 4】

前記波長 210 nm～215 nm に分布する複数の固有の紫外線発光バンドの一つが波長 210 nm の発光バンドである、請求項 2 または 3 に記載の短波長光発光特性を有してなる高純度六方晶窒化ホウ素単結晶。

【請求項 5】

前記波長 210 nm～215 nm に分布する複数の固有の紫外線発光バンドの一つが波長 211 nm の発光バンドである、請求項 2 または 3 項に記載の短波長光発光特性を有してなる高純度六方晶窒化ホウ素単結晶。

【請求項 6】

前記波長 210 nm～215 nm に分布する複数の固有の紫外線発光バンドの一つが波長 215 nm の発光バンドであり、この波長において最大発光強度を有する、請求項 2 または 3 に記載の短波長光発光特性を有してなる高純度六方晶窒化ホウ素単結晶。

【請求項 7】

波長 213 nm に光吸収構造を示す、請求項 1 ないし 6 の何れか 1 項に記載の高純度六方晶窒化ホウ素単結晶。

【請求項 8】

波長 208 nm に光吸収構造を示す、請求項 1 ないし 7 の何れか 1 項に記載の高純度六方晶窒化ホウ素単結晶。

【請求項 9】

高純度のアルカリ金属及びアルカリ土類金属の窒化物並びにこれらのホウ窒化物を溶媒として、窒化ホウ素を原料に用いて再結晶することにより得られる、波長 235 nm 以下の短波長領域に高輝度発光挙動を有する高純度六方晶窒化ホウ素単結晶の製造方法。

【請求項 10】

波長 235 nm 以下に固有の紫外線発光バンドを有する、短波長光発光特性を有する高純度六方晶窒化ホウ素単結晶を使用したことを特徴とした、紫外線発光素子。

【請求項 11】

前記固有の紫外線発光バンドが複数の固有の紫外線発光バンドを有する、短波長光発光特性を有する高純度六方晶窒化ホウ素単結晶を使用してなることを特徴とする、請求項 10 に記載の紫外線発光素子。

【請求項 12】

前記複数の固有の紫外線発光バンドの一部が波長 210 nm～215 nm に分布し、残余バンドが 215 nm を超え 235 nm 以下に分布している、短波長光発光特性を有する高純度六方晶窒化ホウ素単結晶を使用してなる、請求項 11 に記載の紫外線発光素子。

【請求項 13】

前記波長 210 nm～215 nm に分布する複数の固有の紫外線発光バンドの一つが波長 210 nm の発光バンドである、短波長光発光特性を有してなる高純度六方晶窒化ホウ素単結晶を使用してなる、請求項 12 に記載の紫外線発光素子。

【請求項 14】

前記波長 210 nm～215 nm に分布する複数の固有の紫外線発光バンドの一つが波長

211 nmの発光バンドである、短波長光発光特性を有してなる高純度六方晶窒化ホウ素単結晶を使用してなる、請求項12に記載の紫外線発光素子。

【請求項15】

前記波長210 nm～215 nmに分布する複数の固有の紫外線発光バンドの一つが波長215 nmの発光バンドであり、この波長において最大発光強度有する、短波長光発光特性を有してなる高純度六方晶窒化ホウ素単結晶を使用してなる、請求項12に記載の紫外線発光素子。

【請求項16】

波長213 nmに光吸収構造を有する、請求項10ないし15の何れか1項に記載する短波長光発光特性を有してなる高純度六方晶窒化ホウ素単結晶を使用してなる、紫外線発光素子。

【請求項17】

波長208 nmに光吸収構造を有する、請求項10ないし16の何れか1項に記載の短波長光発光特性を有してなる高純度六方晶窒化ホウ素単結晶を使用してなる、紫外線発光素子。

【書類名】明細書

【発明の名称】高輝度紫外線発光六方晶窒化ホウ素単結晶とその製造方法及び高輝度紫外線発光素子

【技術分野】

【0001】

本発明は、波長235nm以下、特に波長215nm～210nmの領域において発光する高輝度固体発光物質とその合成方法ならびに該物質からなる短波長発光素子に関する。

【背景技術】

【0002】

高輝度紫外線発光素子の開発は、近年窒化ガリウムおよびその固溶体を始め、種々の材料によって、発光波長300nm台の発光素子が提案され、実用化に向けて開発が進められている。これら固体発光素子の発光波長の短波長化は、記録媒体への書き込みの高密度化等を始めとして、多くの需要があり、現在までのところ200nm台の発光素子としてダイヤモンド、立方晶窒化ホウ素（以下、cBNと記載する）ならびに窒化アルミニウムが候補として挙げられ、応用に向けた研究が進められている。短波長領域の高輝度発光素子を探索する上では、広いバンドギャップを有すること、化学的に安定であること、望ましくは直接遷移型の半導体であることなどが重要な要因として挙げられる。

【0003】

上述した以外に発光波長が200nm台の発光特性を示す固体発光材料としては、バンドギャップが5.8eV付近で、直接遷移型の半導体である六方晶窒化ホウ素（以下、hBNと記載する）が挙げることができるが、これについては実現を阻む要因があった。hBNは化学的に安定な絶縁材料として古くから利用され、酸化ホウ素とアンモニアとの気相反応によって合成され、今日では多くの形態（粉末、焼結体、膜状の形態など）で利用されている。しかしながら、前示した気相反応によって得られるhBNは、後述するように不純物に起因し、その固有のバンドギャップに相当する発光特性を有するものを得ることは困難であった。今後、この材料を短波長領域の高輝度発光素子として利用しようとする、高純度単結晶の合成手段を確立することが先決である。現段階では、発光波長200nm台の固体発光素子としての可能性に着目し、hBNの合成方法によって、高純度のものを得、期待される発光特性を持ったhBN単結晶を得るのに成功したとの報告はなされていない。

【0004】

hBNは、その合成手法としては、酸化ホウ素とアンモニアとの熱分解反応や気相反応によって合成されていることが知られているが、この反応によって高純度単結晶を得ることは困難であり、単結晶製造手段としては、確立された合成手段とは言えなかった。一方、hBNの高圧相である立方晶窒化ホウ素（以下、cBNという）は、hBN等を原料とし、これにアルカリ金属あるいはアルカリ土類金属のホウ窒化物を溶媒として使用し、該原料を溶媒中で5.5万気圧、1600℃、高温高圧下で再結晶化することにより合成されることが知られているが、得られるcBN単結晶はダイヤモンドに次ぐ硬度を有し、超硬質材料として広く用いられるなど、このcBNの合成手法はすでに工業的に確立されている。

【0005】

このcBNも広いバンドギャップ（Eg: 6.3eV）を有するため、古くから固体の短波長発光素子としての研究も進められてきた。しかしながら、これまでに報告されているcBN単結晶は、いずれも琥珀色からオレンジ色等に着色しており、その発光特性にはcBN固有のバンドギャップに対応する発光挙動を観測しうる状況にはいたっていなかった。その理由、原因としては、cBN結晶内部に含まれる不純物の影響が大きいことが挙げられる。したがって、今後、cBN単結晶を、該結晶のバンドギャップに相応する固有の発光特性を有するものとして利用しようとする、cBN固有の発光特性を十分に把握しておく必要があることは勿論、cBN単結晶の高純度化を達成する合成反応を確立する

ことが重要な研究課題となっていた。このような背景の下に、cBN合成条件を、敢えて、hBNが安定に生成する温度、圧力条件に設定し、hBN単結晶の合成を試みたとの報告がされている（非特許文献1）。しかしながら、この合成実験で用いた育成溶媒からは着色したcBN結晶が得られ、付随的に生成したhBN結晶の発光挙動については、高輝度の短波長発光は、全く示されていない。

【0006】

かかる状況下で、本発明者らにおいては、高純度cBN単結晶を得るべく合成条件を鋭意研究した。その結果、高純度のcBN結晶を得るために必要な要因を見出し、これによって、cBN結晶固有の光学的特性を有する高純度cBN単結晶の合成に成功し、これを学術文献に発表した（非特許文献2）。この合成方法は、要約すると、清浄な乾燥窒素雰囲気確立した上で、吟味して精製した溶媒（ホウ窒化バリウムなど）を用いて結晶の育成を行なうものであり、この手法によって、高純度cBN単結晶を得るのに成功したものである（非特許文献2）。

【0007】

【非特許文献1】H. Akamaru, A. Onodera, T. Endo, O. Mishima, J. Phys. Chem. Solids, 63, 887 (2002) .

【非特許文献2】T. Taniguchi, S. Yamaoka, J. Cryst. Growth, 222, 549 (2001) .

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0008】

以上が、短波長領域の発光特性を有するものとして期待されるhBN材料あるいはその高圧相cBNの現状である。特に、ワイドバンドギャップ半導体であるhBNは直接遷移型であり、高輝度で短波長の固体発光素子として期待されているにもかかわらず、現状は前述したとおりであり、この期待に応えるためには物質本来の特性を引き出すこと、すなわち、不純物の影響を受けない高純度単結晶の合成方法確立することが急務であり、その実現が要請されている。

【0009】

本発明は、これに応えようというものである。すなわち、本発明が解決しようとする課題は、従来のhBNの合成手法ではなし得なかった高純度hBN単結晶を合成し、hBN固有の特性を反映した高輝度短波長紫外線発光を実現しようというものである。

【課題を解決するための手段】

【0010】

そのため本発明者らは、前述非特許文献2において報告した、hBN原料から出発し、これを清浄な乾燥窒素雰囲気と精製溶媒とによって高純度cBN単結晶を得る合成実験につき、これをさらに進め、高純度cBN単結晶を合成する臨界条件を精査、把握する実験を試みた結果、温度圧力条件を適宜調整することによって、高純度hBN単結晶が得られることを見出したものである。

【0011】

そして、得られた該高純度hBN単結晶の光学特性等を精査した結果、以下の光学特性を示すことを知見し、明らかにしたものである。すなわち、得られた結晶は、無色透明、高い電気抵抗を有する高純度の結晶であった。その光学的特性を観察、評価したところ、カソードルミネッセンスにより電子線を用いた励起により、室温において波長215nmに著しく高輝度の発光があることが観察された。また温度83Kにおいては波長210nmから235nmに発光が観測された。光吸収実験によれば、波長208nmと213nmに光吸収構造を示すことを特徴とする吸収スペクトルが得られた。これを、同じ条件で測定した高純度ダイヤモンド単結晶からの紫外線発光と比較すると、hBN単結晶からの室温における波長215nmの発光強度はダイヤモンドの場合のおよそ1000倍以上の値を示すことを見いだしたものである。

【0012】

すなわち、本発明は、前述文献（非特許文献1、2）に記載された先行技術を前提技術とし、高純度hBN単結晶を得るべき鋭意研究した結果、非特許文献2記載の高純度cBN単結晶を得る合成条件を、hBN単結晶の生成条件に設定して実験したところ、波長215nm近傍の短波長領域の発光特性を有してなる高純度hBN単結晶を合成しうることを新たに知見したものである。本発明はこの新たな知見に基づいてなされたものであり、その構成は以下（1）ないし（17）に記載の通りである。

（1） 波長235nm以下に固有の紫外線発光バンドを有してなることを特徴とする、短波長光発光特性を有してなる高純度六方晶窒化ホウ素単結晶。

（2） 前記固有の紫外線発光バンドが、複数の固有の紫外線発光バンドを含んでいる、前記（1）項に記載の短波長光発光特性を有してなる高純度六方晶窒化ホウ素単結晶。

（3） 前記複数の固有の紫外線発光バンドの一部が波長210nm～215nmに分布し、残余バンドが215nmを超え235nm以下に分布している、前記（2）項に記載の短波長光発光特性を有してなる高純度六方晶窒化ホウ素単結晶。

（4） 前記波長210nm～215nmに分布する複数の固有の紫外線発光バンドの一つが波長210nmの発光バンドである、前記（2）または（3）項に記載の短波長光発光特性を有してなる高純度六方晶窒化ホウ素単結晶。

（5） 前記波長210nm～215nmに分布する複数の固有の紫外線発光バンドの一つが波長211nmの発光バンドである、前記（2）または（3）項に記載の短波長光発光特性を有してなる高純度六方晶窒化ホウ素単結晶。

（6） 前記波長210nm～215nmに分布する複数の固有の紫外線発光バンドの一つが波長215nmの発光バンドであり、この波長において最大発光強度有する、前記（2）または（3）に記載の短波長光発光特性を有してなる高純度六方晶窒化ホウ素単結晶。

（7） 波長213nmに光吸収構造を示す、前記（1）ないし（6）の何れか1項に記載の高純度六方晶窒化ホウ素単結晶。

（8） 波長208nmに光吸収構造を示す、前記（1）ないし（7）の何れか1項に記載の高純度六方晶窒化ホウ素単結晶。

（9） 高純度のアルカリ金属及びアルカリ土類金属の窒化物並びにこれらのホウ窒化物を溶媒として、窒化ホウ素を原料に用いて再結晶することにより得られる、波長235nm以下の短波長領域に高輝度発光挙動を有する高純度六方晶窒化ホウ素単結晶の製造方法。

（10） 波長235nm以下に固有の紫外線発光バンドを有する、短波長光発光特性を有する高純度六方晶窒化ホウ素単結晶を使用したことを特徴とした、紫外線発光素子。

（11） 前記固有の紫外線発光バンドが複数の固有の紫外線発光バンドを有する、短波長光発光特性を有する高純度六方晶窒化ホウ素単結晶を使用してなることを特徴とする、前記（10）項に記載の紫外線発光素子。

（12） 前記複数の固有の紫外線発光バンドの一部が波長210nm～215nmに分布し、残余バンドが215nmを超え235nm以下に分布している、短波長光発光特性を有する高純度六方晶窒化ホウ素単結晶を使用してなる、前記（11）項に記載の紫外線発光素子。

（13） 前記波長210nm～215nmに分布する複数の固有の紫外線発光バンドの一つが波長210nmの発光バンドである、短波長光発光特性を有してなる高純度六方晶窒化ホウ素単結晶を使用してなる、前記（12）項に記載の紫外線発光素子。

（14） 前記波長210nm～215nmに分布する複数の固有の紫外線発光バンドの一つが波長211nmの発光バンドである、短波長光発光特性を有してなる高純度六方晶窒化ホウ素単結晶を使用してなる、前記（12）に記載の紫外線発光素子。

（15） 前記波長210nm～215nmに分布する複数の固有の紫外線発光バンドの一つが波長215nmの発光バンドであり、この波長において最大発光強度有する、短波長光発光特性を有してなる高純度六方晶窒化ホウ素単結晶を使用してなる、前記（12）

項に記載の紫外線発光素子。

(16) 波長 213 nm に光吸収構造を有する、前記 (10) ないし (15) の何れか 1 項に記載する短波長光発光特性を有してなる高純度六方晶窒化ホウ素単結晶を使用してなる、紫外線発光素子。

(17) 波長 208 nm に光吸収構造を有する、前記 (10) ないし (16) の何れか 1 項に記載の短波長光発光特性を有してなる高純度六方晶窒化ホウ素単結晶を使用してなる、紫外線発光素子。

【発明の効果】

【0013】

本発明は、従来の技術では得られなかった波長 235 nm 以下、特に 215 nm 近辺に強い高輝度発光挙動を示す六方晶窒化ホウ素単結晶の供給が可能となった。これによって、高輝度紫外線固体発光素子进行設計することが可能となり、高密度記録媒体の開発、紫外線による殺菌など多くの分野でその発光波長の短波長化に向けた需要に応え得ることが可能となった。

【発明を実施するための最良の形態】

【0014】

本発明は、短波長領域で紫外発光する高純度 hBN 単結晶とその合成プロセスであり、短波長領域で紫外発光する高純度 hBN 単結晶は、原料 hBN を高純度のアルカリ金属、あるいはアルカリ土類金属ホウ窒化物溶媒の存在下で高温高压処理し、これによって再結晶化するプロセスによるものであり、再結晶によって、不純物のない、235 nm 以下、特に 215 nm 近辺において高輝度紫外線発光を有する hBN 単結晶を得ることが出来るものである。そのための温度、圧力条件は、高温、高压を必要とする。一応の目安として 2 万気圧、1500℃以上が好ましい。

【0015】

この条件は、原料である窒化ホウ素が溶媒の共存下で hBN に再結晶する温度、圧力条件であり、その間に溶媒として用いたアルカリ金属ないしアルカリ土類金属のホウ窒化物が酸化したり、分解したりせず安定に存在することが必要となる。高圧力下で反応を進めることは有効であり、これによって溶媒の分解が抑制され、大型高純度結晶合成のための長時間の結晶育成が可能となり、好ましい。

【0016】

しかしながら、過度に圧力を高くすると、原料として用いた hBN は、高压相である cBN への相転換が起きるので注意を要する。すなわち、目的とする高純度 hBN 単結晶を得るためには、cBN 単結晶が生じない領域の温度圧力条件を必要とする。図 1 は、hBN の再結晶条件とする温度圧力条件を示すものである。この図によると cBN の熱力学的安定条件下であっても hBN への再結晶は可能であるが、圧力の増加とともに cBN への転換が容易に進行し、hBN の再結晶化を進めるには hBN の安定条件となる高い反応温度が必要となる。

【0017】

すなわち、hBN 再結晶のための上限の圧力としては 6 GPa 程度が適当であり、これ以上の圧力では hBN の熱力学的安定条件に合成条件を設定せねばならず、その際の温度は 3000℃付近となり、充分な大きさの結晶を得るための条件として適当ではない。このため、工業生産としての経済性を考慮すれば、当該単結晶の合成条件の上限としては、6 万気圧程度でよい。下限については、溶媒の分解や酸化を抑制することができれば、1 気圧以下でも再結晶化による高輝度発光高純度 hBN 結晶の合成は可能である。本発明では、図 1 の網掛けで示した hBN 再結晶領域において、高輝度発光高純度 hBN 結晶が合成された。

【0018】

一方、アルカリ金属、及びアルカリ土類金属のホウ窒化物等は水分や酸素と容易に反応し、これら酸化物等を不純物として含む反応系で再結晶した hBN は酸素等の不純物の影響を受け、300 nm 以下の短波長領域において発光する現象を示してなる hBN 単結晶

を得ることが出来なかった。これに対して、本発明は、通常市販に供されているいわゆる低圧相による窒化ホウ素を原料とし、該原料を高純度溶媒を用いて溶解し、再結晶化することにより、従来技術、先行技術では得ることのできなかった、波長 235 nm 以下といった短波長領域での発光、特に波長 215 nm 近傍において高輝度紫外線発光を示す高純度 hBN 単結晶を提供することができるものである。

【実施例】

【0019】

以下、本発明を実施例及び図面に基づいて説明する。但し、この実施例等は発明を容易に理解するための一助として開示するものであり、本発明はこの実施例等によって限定されるものではない。

【0020】

実施例 1；

真空中で 1500℃、窒素気流中で 2000℃の熱処理による脱酸素処理を施した六方晶窒化ホウ素焼結体（粒径約 0.5 μm）をホウ窒化バリウム溶媒とともに高圧容器内のモリブデンカプセルに充填した。これらの溶媒の調整並びに試料のカプセルへの充填は、すべて乾燥窒素雰囲気中で行った。高圧反応容器をベルト型超高圧力発生装置により 2.5 万気圧、1700℃、の圧力、温度条件で 20 時間処理した。昇温速度は 50℃/分程度であった。500℃/分程度で冷却後、除圧し試料を圧力容器内のモリブデンカプセルと共に回収した。

機械的又は化学処理（塩酸－硝酸混液）によりモリブデンカプセルを除去し試料を回収した。無色、透明で六角柱状の結晶（1～3 mm 程度）が得られ、その評価は光学顕微鏡観察、SEM 観察、X 線回折による相の同定、ならびに光学的特性の評価（透過率、カソードルミネッセンス）を行った。結晶粒子の X 線回折図形より、結晶は hBN 単相であることが確かめられた。カソードルミネッセンス観察では図 2 に示すように室温において波長 215 nm 近傍に単峰性の高輝度の紫外線発光が、また、図 3 に示すように温度 83 K において 210 nm から 235 nm において紫外線発光スペクトル（図中上向き矢印↑で示す）が観測された。

光吸収測定では、波長 2500 nm から 200 nm 近傍にかけて高い透過率を示し、図 3 に示すように温度 8 K において波長 208 nm と 213 nm に光吸収構造（図中下向き矢印↓で示す）が観測された。

【0021】

実施例 2；

真空中で 1500℃、窒素気流中で 2000℃の熱処理による脱酸素処理を施した六方晶窒化ホウ素焼結体（粒径約 0.5 μm）をホウ窒化バリウムとホウ窒化リチウムを重量比 1：1 で混合した溶媒とともにモリブデンカプセルに充填した。実施例 1 と同様の方法で高圧処理を行い、試料を回収した。回収した試料は実施例 1 同様の形態であり、hBN 結晶であることが確かめられ、カソードルミネッセンス測定により波長 215 nm に高輝度の発光と共に、300 nm 付近のブロードな発光が観測された。

【0022】

実施例 3；

真空中で 1500℃、窒素気流中で 2000℃の熱処理による脱酸素処理を施した六方晶窒化ホウ素焼結体（粒径約 0.5 μm）をホウ窒化バリウムとホウ窒化リチウムを重量比 1：1 で混合した溶媒とともにモリブデンカプセルに充填した。これらの溶媒の調整並びに試料のカプセルへの充填は、すべて乾燥窒素雰囲気中で行った。モリブデン反応容器を窒素気流中 1 気圧、1500℃、の圧力、温度条件で 2 時間処理した。昇温速度は 10℃/分程度であった。20℃/分程度で冷却後、モリブデンカプセルを回収した。

機械的又は化学処理（塩酸－硝酸混液）によりモリブデンカプセルを除去し試料を回収した。溶媒部分は一部、分解の様相を示しているが、hBN 原料との界面で一部再結晶が見られた。酸処理により溶媒成分を除去、洗浄した後 hBN 結晶の評価を光学顕微鏡観察、SEM 観察、X 線回折による相の同定、ならびに光学的特性の評価（透過率、カソード

ルミネッセンス)を行った。その結果、カソードルミネッセンス測定により波長 215 nm に高輝度の発光と共に、300 nm 付近のブロードな発光が観測された。

【0023】

比較例 1;

市販の hBN 焼結体及び hBN 粉末を真空中で 1500℃、窒素気流中で 2000℃ の熱処理による脱酸素処理を施した後、カソードルミネッセンスにより発光挙動を測定した。その結果、215 nm 近傍の単峰性の強い発光は観測されなかった。

【0024】

比較例 2;

実施例 1 記載のプロセスにおいて、使用した溶媒が一部酸化により、酸素不純物を含んでいた場合、この溶媒を再度 hBN 合成実験に再使用して、原料を仕込み高圧高温処理すると再結晶 hBN 単結晶が合成される。しかし、カソードルミネッセンス測定によると、波長 215 nm よりも、300 nm 付近にブロードな強い発光が観測された。酸素等の不純物の影響により、高輝度の短波長発光特性が阻害されたものと考えられる。

【0025】

上記比較例 2 の意義は、本高純度 hBN 単結晶を製造し、良好な高輝度発光特性を発現させるためには、使用する溶媒は高純度の育成溶媒を用いた再結晶プロセスが重要であることを教示するものである。これら実施例並びに比較例は、本発明において高純度高輝度発光 hBN 単結晶を作製する際に、合成条件における雰囲気と使用する溶媒の高純度化が重要であることを示している。低圧相窒化ホウ素を原料に用いたホウ窒化バリウム等の高純度溶媒による再結晶により、波長 215 nm で単峰性の高輝度発光挙動を示す六方晶窒化ホウ素単結晶が得られた。

【産業上の利用可能性】

【0026】

本発明は、従来の技術では得られなかった波長 235 nm 以下、特に 210 nm から 215 nm に強い高輝度発光挙動を示す六方晶窒化ホウ素単結晶を提供するものであり、これによって、高輝度紫外線固体発光素子を容易に設計することが可能となったことに加え、近年ますます高密度記録媒体の開発が求められる中、これに応えられる基本的材料を提供できたことは大きな意義があり、産業の発展に大いに寄与するものと期待される。また、紫外線による殺菌処理を求めるニーズは、今日重要な環境対策の一つとしてクローズアップされてきた。本発明はそのための有効な材料を提供するものであることから、今後、この面でも産業の発展に寄与し、生活環境の向上に大いに寄与するものと期待される。

【図面の簡単な説明】

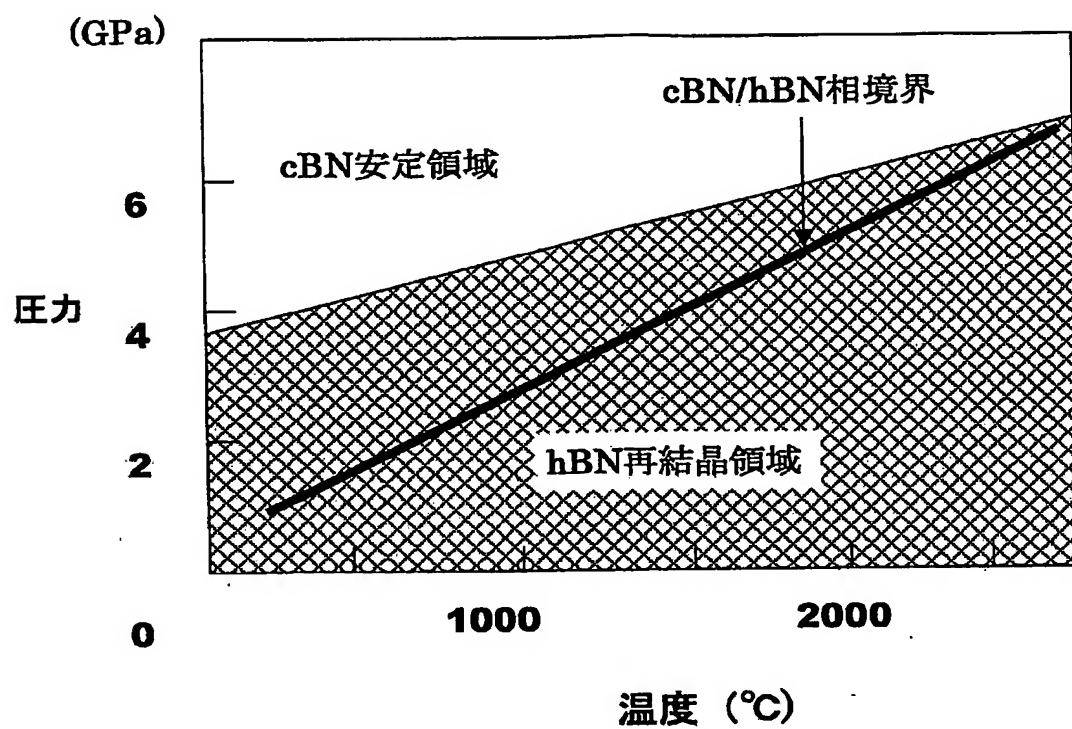
【0027】

【図 1】再結晶 hBN の合成条件の温度と圧力の関係を示す図。

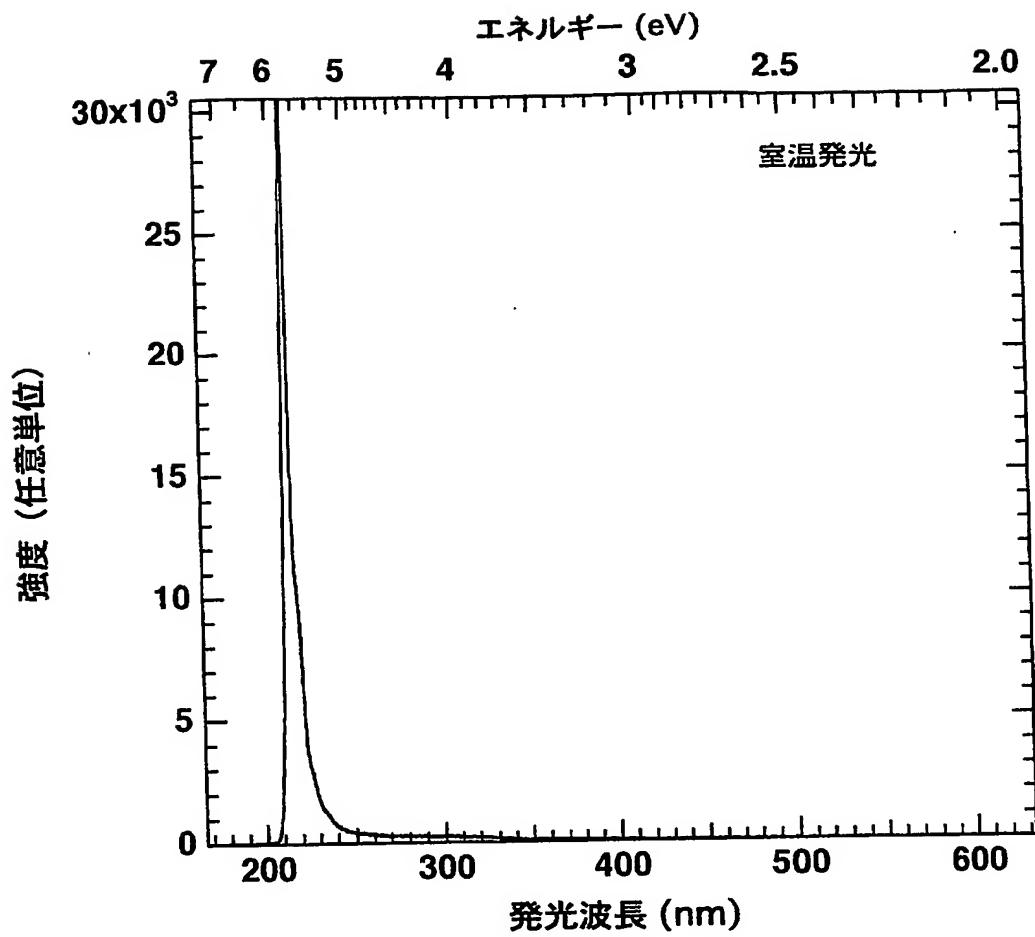
【図 2】実施例 1 において合成した高純度 hBN 単結晶から得られたカソードルミネッセンススペクトルを示す図。

【図 3】実施例 1 において合成した高純度 hBN 単結晶から得られたカソードルミネッセンススペクトルと光吸収スペクトルを示す図。

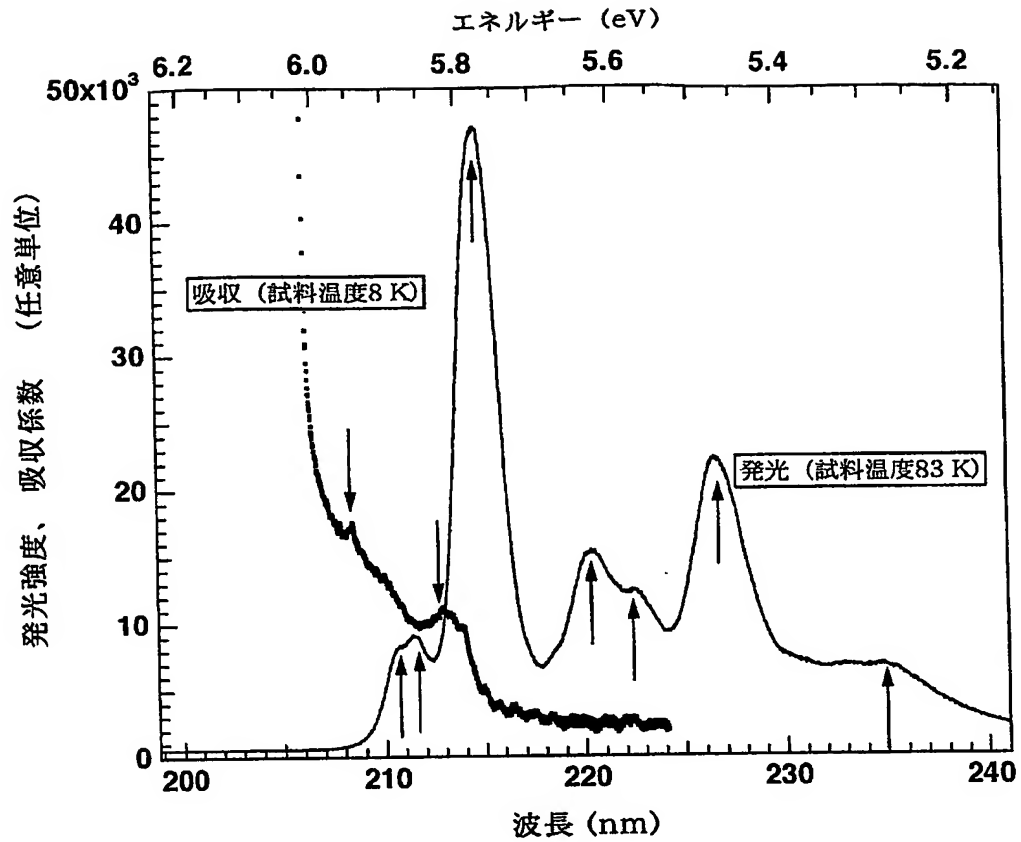
【書類名】図面
【図 1】



【図 2】



【図 3】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 不純物の影響を全く受けない、固有の特性を反映した高輝度短波長紫外線発光する高純度六方晶窒化ホウ素単結晶を提供し、前記単結晶を使用することによって、高輝度紫外線発光する素子を提供しようというものである。

【解決手段】 高純度のアルカリ金属及びアルカリ土類金属（バリウム及びリチウムなど）の窒化物並びにこれらのホウ窒化物を溶媒として、窒化ホウ素を原料に用いて再結晶することによって、波長 2 3 5 nm 以下の高輝度発光挙動を有する高純度六方晶窒化ホウ素単結晶を得る。

【選択図】 図 3

特願 2 0 0 3 - 3 8 8 4 6 7

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号

[3 0 1 0 2 3 2 3 8]

1. 変更年月日

2 0 0 1 年 4 月 2 日

[変更理由]

新規登録

住 所

茨城県つくば市千現一丁目 2 番 1 号

氏 名

独立行政法人物質・材料研究機構